

Docket No. 218103US2/



1745-6-2

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Gang XIE

GAU: 1745

SERIAL NO: 10/045,046

EXAMINER:

FILED: January 15, 2001

FOR: ELECTRODE, METHOD OF PRODUCING THE SAME, AND SOLID-STATE HIGH MOLECULAR WEIGHT ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL EMPLOYING THE ELECTRODE

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number [US App No], filed [US App Dt], is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
JAPAN	2001-006811	January 15, 2001

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and  
(B) Application Serial No.(s)
  - ☐ are submitted herewith
  - ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

RECEIVED  
APR 9 - 2002  
TC 1700

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Marvin J. Spivak  
Registration No. 24,913

Surinder Sachar  
Registration No. 34,423



22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 10/98)



47492(米)  
10/045,046  
218/0305-97-97-2

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 1月15日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-006811

[ ST.10/C ]:

[ JP2001-006811 ]

出 願 人

Applicant(s):

アイシン精機株式会社

RECEIVED

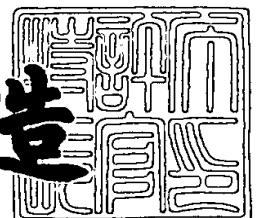
APR 9 - 2002

TC 1700

2002年 1月18日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3116307

【書類名】 特許願

【整理番号】 AJ99-0295

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02  
H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地 アイシン精機株式会社  
社内

【氏名】 謝 剛

【特許出願人】

【識別番号】 000000011

【氏名又は名称】 アイシン精機株式会社

【代表者】 豊田 幹司郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011176

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用電極およびその製造方法および固体高分子電解質型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 導電性とガス透過性を有する電極構造体と、該電極構造体に直接担持された触媒が備えられていることを特徴とする燃料電池用電極。

【請求項 2】 前記電極構造体が導電性繊維体によって構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用電極。

【請求項 3】 前記電極構造体が導電性繊維体の中に導電性粒子を分散して構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用電極。

【請求項 4】 前記導電性繊維体が活性炭素繊維であることを特徴とする請求項 2 または 3 記載の燃料電池用電極。

【請求項 5】 前記電極構造体が導電性粒子の焼結体または導電性多孔質体によって構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用電極。

【請求項 6】 導電性とガス透過性を有する電極構造体を撥水处理する撥水处理工程と、この撥水处理された電極構造体に触媒を担持する触媒担持工程と、触媒担持後にイオン交換樹脂を塗布するイオン交換樹脂塗布工程が設けられていることを特徴とする燃料電池用電極の製造方法。

【請求項 7】 前記電極構造体が導電性繊維体の中に導電性粒子を含浸させて製造されることを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池用電極の製造方法。

【請求項 8】 請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の一对の燃料電池用電極または請求項 6、7 のいずれかの方法で製造された一对の燃料電池用電極と、該燃料電池用電極により両側から挟持されて膜電極接合体を形成する固体高分子電解質膜と、前記燃料電池用電極に当接して位置し、該燃料電池用電極との当接面にガス流路が設けられ、前記膜電極接合体を挟持する一对のセパレータが設けられていることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は燃料電池用電極およびその製造方法および固体高分子電解質型燃料電池に関する。

#### 【 0 0 0 2 】

##### 【従来の技術】

大気の汚染をできる限り減らすために自動車の排ガス対策が重要になっており、その対策の一つとして電気自動車を使用されているが、充電設備や走行距離などの問題で普及に至っていない。

#### 【 0 0 0 3 】

大気汚染防止、CO<sub>2</sub>排出規制および石油資源枯渇といった地球規模での環境・資源問題に対処するため、クリーンでエネルギー密度が高く、充電時間が不要な燃料電池は最も脚光を浴び、世界中で急ピッチに研究開発が進められている。すなわち、燃料電池は水素と酸素を使用して電気分解の逆反応で発電し、水以外の排出物がなくクリーンな発電装置として注目されており、燃料電池を使用した自動車が最も将来性のあるクリーンな自動車であると見られている。燃料電池の中でも固体高分子電解質型燃料電池が低温で作動するため自動車用として最も有望である。

#### 【 0 0 0 4 】

しかしながら、現段階では、実用化のために克服しなければならないいくつかの課題が残されている。固体高分子電解質型燃料電池は、一般的に多数の単セルが積層されており、単セルは、二つの電極（燃料極と酸化剤極）で固体高分子電解質膜を挟持して接合した膜電極接合体を、燃料ガスまたは酸化剤ガスのガス流路を有するセパレータで挟んだ構造をしている。

#### 【 0 0 0 5 】

従来一般的な電極として、ガス拡散のできるガス拡散層と集電体の役割を併せ持つ多孔質の電極構造体の平面上に触媒を担持させたカーボン粒子からなる触媒層が設けられている。触媒には白金、白金系合金などの貴金属が使用されている。高価な貴金属の使用量を減らすために、触媒を担持させたカーボン粒子として比表面積が非常に大きなカーボンブラックに貴金属を担持させた触媒担持カーボンが一般的に用いられている。

## 【0006】

この触媒層を固体高分子電解質膜側に対向させて膜電極接合体が構成されている。発電時に、燃料極、酸化剤極にそれぞれ供給された燃料ガス、酸化剤ガスが電極構造体を通して触媒層に入る。燃料極においては燃料ガス中の水素が触媒に吸着し電気化学酸化反応が行われ、酸化剤極においては酸化剤ガス中の酸素が触媒に吸着し電気化学還元反応が行われて発電されるものであった。

## 【0007】

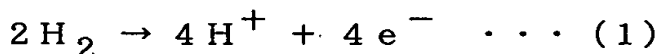
図5は従来の固体高分子電解質型燃料電池のセルの基本構造を示す断面図である。固体高分子電解質膜20が一对の燃料電池用電極（燃料極21と酸化剤極22）により両側から挟持され接合されて、膜電極接合体30が形成されている。この膜電極接合体30は図示しない一对のセパレータにより挟持されている。それぞれのセパレータの電極との当接面には燃料極または酸化剤極にそれぞれ燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するためのガス流路が設けられている。

## 【0008】

燃料極21と酸化剤極22は、いずれも電極構造体21a、22aの平面上に触媒層21b、22bが形成されている。燃料極21と酸化剤極22は、いずれも触媒層21b、22b側が固体高分子電解質膜20に当接するように、固体高分子電解質膜20を挟持している。電極構造体21a、22aは導電性とガス透過性を有する電極構造体で、電極に供給されたガスを触媒層21b、22bに供給するためのガス拡散層と、電子を通す集電体の役割を併せ持っている。

## 【0009】

燃料極21に供給された燃料ガスは、電極構造体21aを通して、触媒層21bに到達し、燃料ガス中の水素から式(1)の反応によりプロトン $H^+$ が生成される。

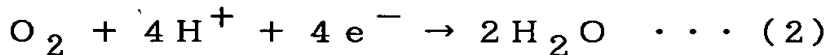


触媒層21bで生成されたプロトン $H^+$ は、固体高分子電解質膜20を通して酸化剤極22に向かって移動する。同時に、触媒層21bで生成された電子 $e^-$ は、触媒層21b、電極構造体21aを通り、外部負荷41が設けられた外部回路40を介して酸化剤極22の触媒層22bに移動する。

## 【 0 0 1 0 】

一方、酸化剤極 2 2 では酸化剤ガスが電極構造体 2 2 a を通って触媒層 2 2 b に到達し、酸化剤ガス中の酸素が外部回路 4 0 から移動してきた電子  $e^-$  を貰って、式 (2) の反応で還元され、燃料極 2 1 から固体高分子電解質膜 2 0 を通って移動してきたプロトン  $H^+$  と結合して水となる。

## 【 0 0 1 1 】



生成された水の一部は、濃度勾配によって固体高分子電解質膜 2 0 に入り、燃料極 2 1 に向かって拡散して移動し、一部は蒸発して触媒層 2 2 b および電極構造体 2 2 a を通ってガス流路まで拡散し、未反応の酸化剤ガスと一緒に排出される。こうして燃料ガスと酸化剤ガスから発電される。

## 【 0 0 1 2 】

このように、従来の燃料電池用電極はガス拡散層と集電体を兼ねる電極構造体の平面上に触媒層を設けた構造であった。

## 【 0 0 1 3 】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来の燃料電池用電極では、触媒利用率が低い問題、内部抵抗が大きい問題、ガス拡散においても生成水の拡散においても物質輸送律速になりがちであるという問題があった。このため燃料電池の出力特性が不十分であった。

## 【 0 0 1 4 】

本発明は上記課題を解決したもので、触媒利用率、電気伝導性、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極および出力特性に優れた燃料電池を提供する。

## 【 0 0 1 5 】

## 【課題を解決するための手段】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項 1 において講じた技術的手段（以下、第 1 の技術的手段と称する。）は、導電性とガス透過性を有する電極構造体と、該電極構造体に直接担持された触媒が備えられていることを特徴とする燃料電池用電極である。

【0016】

上記第1の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0017】

すなわち、電極構造体に触媒を直接担持しているため、集電体の機能を有する電極構造体と触媒が、その間にイオン交換樹脂が介在することなく直接接触しているため、触媒が効率的に電気化学反応に寄与し、触媒利用率を向上できる。また、電極構造体と触媒が直接接触しているため、電気伝導性に優れた燃料電池用電極ができる。さらにガスや水の拡散性は電極構造体の構造によって確保できるので、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極ができる。

【0018】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項2において講じた技術的手段（以下、第2の技術的手段と称する。）は、前記電極構造体が導電性繊維体によって構成されていることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用電極である。

【0019】

上記第2の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0020】

すなわち、導電性繊維体で構成されているため、電極構造体としての強度と電気伝導性を併せ持つ燃料電池用電極ができる。

【0021】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項3において講じた技術的手段（以下、第3の技術的手段と称する。）は、前記電極構造体が導電性繊維体の中に導電性粒子を分散して構成されていることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用電極である。

【0022】

上記第3の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0023】

すなわち、導電性繊維体の中に導電性粒子を分散することにより、最適な電気伝導性とガス透過性を有する燃料電池用電極ができる。

【0024】



上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項４において講じた技術的手段（以下、第４の技術的手段と称する。）は、前記導電性繊維体が活性炭素繊維であることを特徴とする請求項２または３記載の燃料電池用電極である。

## 【 0 0 2 5 】

上記第４の技術的手段による効果は、以下のようである。

## 【 0 0 2 6 】

すなわち、比表面積の大きな活性炭素繊維を使用しているので、触媒を高分散に担持することができ、触媒活性に優れた燃料電池用電極ができる。しかも触媒分散と電極形成が同じ工程で完成できるので、高分散している触媒担持カーボンを使用しても電極形成工程で触媒担持カーボンが凝集し触媒利用率が低下する従来技術の問題点が解消され、触媒活性に優れた燃料電池用電極ができる。

## 【 0 0 2 7 】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項５において講じた技術的手段（以下、第５の技術的手段と称する。）は、前記電極構造体が導電性粒子の焼結体または導電性多孔質体によって構成されていることを特徴とする請求項１記載の燃料電池用電極である。

## 【 0 0 2 8 】

上記第５の技術的手段による効果は、以下のようである。

## 【 0 0 2 9 】

すなわち、導電性粒子の焼結体または導電性多孔質体で構成されているので、請求項２と同様、電極構造体としての強度と電気伝導性を併せ持つ燃料電池用電極ができる。

## 【 0 0 3 0 】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項６において講じた技術的手段（以下、第６の技術的手段と称する。）は、導電性とガス透過性を有する電極構造体を撥水处理する撥水处理工程と、この撥水处理された電極構造体に触媒を担持する触媒担持工程と、触媒担持後にイオン交換樹脂を塗布するイオン交換樹脂塗布工程が設けられていることを特徴とする燃料電池用電極の製造方法である。

## 【 0 0 3 1 】

上記第 6 の技術的手段による効果は、以下のようである。

## 【 0 0 3 2 】

電極構造体に触媒を担持したのちにイオン交換樹脂を塗布しているため、集電体の機能を有する電極構造体と触媒が、その間にイオン交換樹脂が介在することなく直接接触しているので、触媒が効率的に電気化学反応に寄与し、触媒利用率を向上できる。また、電極構造体と触媒が直接接触しているので、電気伝導性に優れた燃料電池用電極ができる。さらにガスや水の拡散性は電極構造体の構造によって確保できるので、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極ができる。

## 【 0 0 3 3 】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項 7 において講じた技術的手段（以下、第 7 の技術的手段と称する。）は、前記電極構造体が導電性繊維体の中に導電性粒子を含浸させて製造されることを特徴とする請求項 6 記載の燃料電池用電極の製造方法である。

## 【 0 0 3 4 】

上記第 7 の技術的手段による効果は、以下のようである。

## 【 0 0 3 5 】

すなわち、請求項 3 と同様、導電性繊維体の中に導電性粒子を分散することにより、最適な電気伝導性とガス透過性を有する燃料電池用電極ができる。

## 【 0 0 3 6 】

上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項 8 において講じた技術的手段（以下、第 8 の技術的手段と称する。）は、請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の一对の燃料電池用電極または請求項 6、7 のいずれかの方法で製造された一对の燃料電池用電極と、該燃料電池用電極により両側から挟持されて膜電極接合体を形成する固体高分子電解質膜と、前記燃料電池用電極に当接して位置し、該燃料電池用電極との当接面にガス流路が設けられ、前記膜電極接合体を挟持する一对のセパレータが設けられていることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池である。

## 【 0 0 3 7 】

上記第8の技術的手段による効果は、以下のである。

【0038】

すなわち、触媒利用率、電気伝導性、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極を使用しているので、出力特性に優れた燃料電池ができる。

【0039】

【発明の実施の形態】

燃料電池において、電極構造体および触媒層の電気抵抗が内部抵抗となり、出力を低下させることに繋がる。従来の燃料極および酸化剤極は、あらかじめ白金を担持したカーボン粉末にイオン交換樹脂溶液および分散剤を加え、得られた混合物を混練してペーストを形成し、このようにして得られた触媒ペーストを撥水处理が施された電極構造体の表面に均一に塗布し、その後乾燥することにより、電極構造体の表面に触媒層を形成して製造されていた。

【0040】

この電極製造方法を考察すると、触媒ペーストを作製するときにイオン交換樹脂が混入されているため、白金担持カーボン同士の接触が悪くなったり、あるいは白金担持カーボンが周囲を完全にイオン交換樹脂によって囲まれ孤立したりすることが起っていると考えられる。燃料電池用電極の電気化学反応は、触媒とガス（水素または酸素）とイオン交換樹脂溶液の三相界面を形成しないと起こらないが、周囲を完全にイオン交換樹脂によって囲まれている白金担持カーボンでは触媒がガスに接触できず三相界面が形成されないため、その部分では電気化学反応が起こらず、触媒層の触媒利用率が低くなり、燃料電池の出力特性が低くなっていると考えられる。

【0041】

燃料電池においては、触媒同士または触媒と集電体の間に電子伝導性を有するネットワークが形成され、さらに触媒と電解質膜の間にイオン伝導性を有するネットワークが形成されない限り、触媒が電気化学反応に寄与しない。触媒層の電子伝導性は白金担持カーボンが互いに接触することによってもたされているが、イオン交換樹脂が介在することによって白金担持カーボン同士の接触が悪くなるため、触媒層の電氣的な抵抗も大きくなってしまう。

## 【0042】

本発明者は、上記考察をもとに、集電体・ガス拡散層・触媒層を一体化し、触媒同士および触媒と集電体の間にイオン交換樹脂を混入させないことに着目し、導電性とガス透過性を有する電極構造体に触媒を直接担持させるという本発明の技術的思想に到達した。これによって触媒利用率、電気伝導性、ガス透過性に優れた燃料電池用電極および出力特性に優れた固体高分子電解質型燃料電池を提供できる。

## 【0043】

以下、本発明の実施例について説明する。

## 【0044】

## (実施例1)

図1は、本発明の実施例1の製造方法を説明する説明図であり、図1(a)は電極構造体の模式図、図1(b)は撥水処理された電極構造体の模式図、図1(c)は実施例1の電極の模式図である。電極構造体として活性炭素繊維カーボクロス1を用いた(図1(a))。活性炭素繊維カーボクロス1は導電性を有する活性炭素繊維4から形成された導電性繊維体である。活性炭素繊維カーボクロス1は日本カイノール株式会社製のACC-507-15を使用した。その厚みは約500 $\mu$ m、目付け量は120g/cm<sup>2</sup>である。活性炭素繊維カーボクロス1に使用されている活性炭素繊維4は、ミクロポアが繊維表面に多く存在し、比表面積が大きな炭素繊維である。比表面積としては、100~3000m<sup>2</sup>/gのものがあるが、実施例では1500m<sup>2</sup>/gのものを使用した。

## 【0045】

ダイキン工業株式会社製のテトラフルオロエチレン(以下、PTFEと称する。)粒子含有濃度が60%のディスパージョン原液(商品名:POLYFLON D1グレード)をPTFEの含有濃度が15wt%になるように水で希釈する。この溶液の中に活性炭素繊維カーボクロス1を投入して十分に溶液を含浸させる。次に80℃に温度に保った乾燥炉で余分な水分を蒸発させた後に、焼結温度390℃で60分保持してPTFE焼結し、撥水処理カーボクロス2を得た(図1(b))。

## 【0046】

次に、ジニトロジアミン白金硝酸溶液（白金含有率8wt%）を準備し、このジニトロジアミン白金硝酸溶液に、上記の撥水処理された撥水処理カーボクロス2を浸漬し30分間保持した。そして、ジニトロジアミン白金硝酸溶液にから撥水処理カーボクロス2を引き上げ、そのままの状態に30分間自然乾燥して表面を乾かした後、200℃で30分間熱処理した。ジニトロジアミン白金硝酸溶液への浸漬、乾燥、熱処理を、白金の正味担持量が電極表面の面積当たり0.2mg/cm<sup>2</sup>になるまで繰り返し白金担持カーボクロスを得た。

## 【0047】

その後、この白金担持カーボクロスに5%のイオン交換樹脂溶液（イオン交換樹脂：旭化成株式会社製 アシプレックスSS-1080）に5分間含浸し、自然乾燥して燃料電池用電極3を得た。この燃料電池用電極3を酸化剤極14および燃料極15として使用する。触媒である白金粒子5は活性炭素繊維カーボクロス1を形成している活性炭素繊維4に直接担持され、担持された活性炭素繊維4の上からイオン交換樹脂が覆っている。

## 【0048】

図2は実施例1の固体高分子電解質型燃料電池単セルの模式断面図である。固体高分子電解質膜13としてデュポン株式会社製のナフィオン112を用いた。この固体高分子電解質膜13を、上記で作成した酸化剤極14と燃料極15で挟持した状態で、120℃、2MPa、1分間の条件でホットプレスして膜電極接合体18を作成した。この膜電極接合体18をセパレータ16とセパレータ17で挟持して、固体高分子電解質型燃料電池単セルを製造する。セパレータ16には、酸化剤ガスが流通する酸化剤ガス流路16aが設けられている。セパレータ17には、燃料ガスが流通する燃料ガス流路17aが設けられている。

## 【0049】

こうして製造した固体高分子電解質型燃料電池単セルの発電実験を行い出力特性を評価した。評価条件は、セル温度80℃、酸化剤ガスとして空気（利用率40%）を酸化剤ガス流路16aに、燃料ガスとして水素を（利用率80%）燃料ガス流路17aに、それぞれ0.25MPaで供給して行った。この際、酸化剤

ガスには空気ガス量に対しモル比で0.04、燃料ガスには純水素ガス量に対しモル比で0.22の水蒸気を供給して加湿した。

## 【0050】

## (実施例2)

図3は、本発明の実施例2の製造方法を説明する説明図であり、図3(a)は活性炭素繊維カーボンのクロス6の模式図、図3(b)は電極構造体の模式図、図3(c)は撥水処理された電極構造体の模式図、図3(d)は実施例2の電極の模式図である。電極構造体7は、活性炭素繊維カーボンクロス6(図3(a))を用いて製作した。活性炭素繊維カーボンクロス6は実施例1と同じものを使用した。図3で図2より繊維間の間隔が大きいのは、拡大して描かれているためである。

## 【0051】

導電性粒子としてキャボットジャパン社製のカーボンブラック(平均粒径40nm)を使用した。カーボンブラックにカーボンブラック重量の10倍のエチレングリコールと1.8倍のIPAを成形助剤として加えて攪拌混合しカーボンブラックペーストを作製した。このカーボンブラックペーストをスクリーン印刷法を用いて活性炭素繊維カーボンクロス6に染み込ませ、乾燥させて電極構造体7を作製した。図3において、10は活性炭素繊維、11はカーボンブラック粒子である。

## 【0052】

この電極構造体7を実施例1と同じ組成のディスパージョン溶液に含浸させる。その後、80℃に温度に保った真空乾燥炉中で2時間乾燥し、溶媒を蒸発させてから焼結温度390℃で60分保持してPTFE焼結し、撥水処理された電極構造体8を作製した。

## 【0053】

次に実施例1と同様に、 $0.2\text{ mg/cm}^2$ の白金触媒を直接担持させ、イオン交換樹脂溶液に含浸させて燃料電池用電極9を製造した。触媒である白金粒子12は、電極構造体7を形成している活性炭素繊維10およびカーボンブラック粒子11に直接担持され、担持された活性炭素繊維10およびカーボンブラック

粒子 11 の上からイオン交換樹脂が覆っている。

## 【0054】

こうして得られた燃料電池用電極 9 を酸化剤極 14 および燃料極 15 として使用し、実施例 1 と同様に固体高分子電解質型燃料電池単セルを製造し、実施例 1 と同じ評価を行った。

## 【0055】

(比較例)

電極構造体として東レ株式会社製カーボンペーパー（商品名：トレカ TGP-060、厚さ  $180\mu\text{m}$ ）を使用した。このカーボンペーパーを実施例 1 と同じ組成のディスパーション溶液に含浸させる。その後、 $80^{\circ}\text{C}$  に温度に保った真空乾燥炉中で 2 時間乾燥し、溶媒を蒸発させてから焼結温度  $390^{\circ}\text{C}$  で 60 分保持して PTFE 焼結し撥水処理した。

## 【0056】

白金担持濃度が 40 wt % の白金担持カーボン（ジョンソン・マッセイ株式会社製、HiSPEC4000）12 g と 5 wt % 濃度のイオン交換樹脂溶液（旭化成株式会社製、SS-1080）180 g と水 22.8 g および成形助剤としてのイソプロピルアルコール 22.8 g とを十分に混合し触媒ペーストを作製した。この触媒ペーストを上記の撥水処理されたカーボンペーパーにドクターブレード法により白金担持量が  $0.2\text{mg}/\text{cm}^2$  になるように触媒層を形成後、乾燥させて燃料電池用電極を作製した。この燃料電池用電極を酸化剤極および燃料極として使用し、実施例 1 と同様に固体高分子電解質型燃料電池単セルを製造し、実施例 1 と同じ評価を行った。

## 【0057】

(評価結果)

図 4 は、実施例 1、2 および比較例の出力特性を表すグラフ図である。実施例 1、2 は、いずれの電流密度においても比較例より高い出力電圧が得られた。

## 【0058】

電極構造体に触媒を直接担持させたのちイオン交換樹脂のコーティング処理をしているので、電極構造体と触媒をイオン交換樹脂を介在させることなく直接接

触させることができる。このため集電体の機能を有する電極構造体と触媒間に電子伝導性に優れたネットワークが形成されるので、触媒が効率的に電気化学反応に寄与し、触媒利用率を向上できる。

## 【0059】

また電極構造体と触媒が直接接触しているので、電気伝導性に優れた燃料電池用電極ができる。さらに比表面積の大きな活性炭素繊維を使用しているので、触媒を高分散に担持することができ、触媒活性に優れた燃料電池用電極ができる。しかも触媒分散と電極形成が同じ工程で完成できるので、高分散している触媒担持カーボンを使用しても電極形成工程で触媒担持カーボンが凝集し触媒利用率が低下する従来技術の問題点が解消され、触媒活性に優れた燃料電池用電極ができる。

## 【0060】

さらにガスや水の拡散性は電極構造体の構造によって確保できるので、目的に適合したガス透過性を電気伝導性を有する電極構造体を選択することにより、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極ができる。

## 【0061】

こうした触媒利用率、電気伝導性、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極を使用して燃料電池を製造しているので、燃料電池の出力特性を向上させることができた。

## 【0062】

実施例2のように、導電性繊維体の中に導電性粒子を分散して電極構造体を形成することにより、導電性繊維の空隙率、導電性粒子の粒径や量などで電極構造体のガス透過性を制御できる。また同様に電気伝導性も制御できる。これらの制御により最適な電気伝導性とガス透過性を有する燃料電池用電極を製造できる。

## 【0063】

実施例では電極構造体として導電性繊維あるいはそれを基材としたもので説明したが、これに限定されず、導電性粒子の焼結体、導電性多孔質体、それらの複合体など導電性とガス透過性を有するものが使用できる。しかし導電性繊維体を使用すれば、電極構造体としての強度と電気伝導性を併せ持つことができる。導



電性粒子の焼結体、導電性多孔質体でも電極構造体としての強度と電気伝導性を併せ持つことが可能である。

#### 【0064】

実施例では導電性繊維として活性炭素繊維を使用しているが、特に限定されず導電性を有する繊維なら適宜適用できる。活性炭素繊維を使用すれば、大きな比表面積を有しているので、触媒を高分散に担持することができ、触媒活性に優れた燃料電池用電極ができる。

#### 【0065】

##### 【発明の効果】

以上のように、本発明は、導電性とガス透過性を有する電極構造体と、該電極構造体に直接担持された触媒が備えられていることを特徴とする燃料電池用電極およびこの燃料電池用電極により両側から挟持されて膜電極接合体を形成する固体高分子電解質膜と、前記燃料電池用電極に当接して位置し、該燃料電池用電極との当接面にガス流路が設けられ、前記膜電極接合体を挟持する一対のセパレータが設けられていることを特徴とする燃料電池であるので、内部抵抗が小さく、ガスや水の拡散性に優れた燃料電池用電極および出力特性に優れた燃料電池を提供できる。

##### 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

本発明の実施例1の製造方法を説明する説明図であり、図1(a)は電極構造体の模式図、図1(b)は撥水处理された電極構造体の模式図、図1(c)は実施例1の電極の模式図である。

#### 【図2】

実施例1の固体高分子電解質型燃料電池単セルの模式断面図

#### 【図3】

本発明の実施例2の製造方法を説明する説明図であり、図3(a)は活性炭素繊維カーボンの模式図、図3(b)は電極構造体の模式図、図3(c)は撥水处理された電極構造体の模式図、図3(d)は実施例2の電極の模式図である。

【図 4】

実施例 1、2 および比較例の出力特性を表すグラフ図

【図 5】

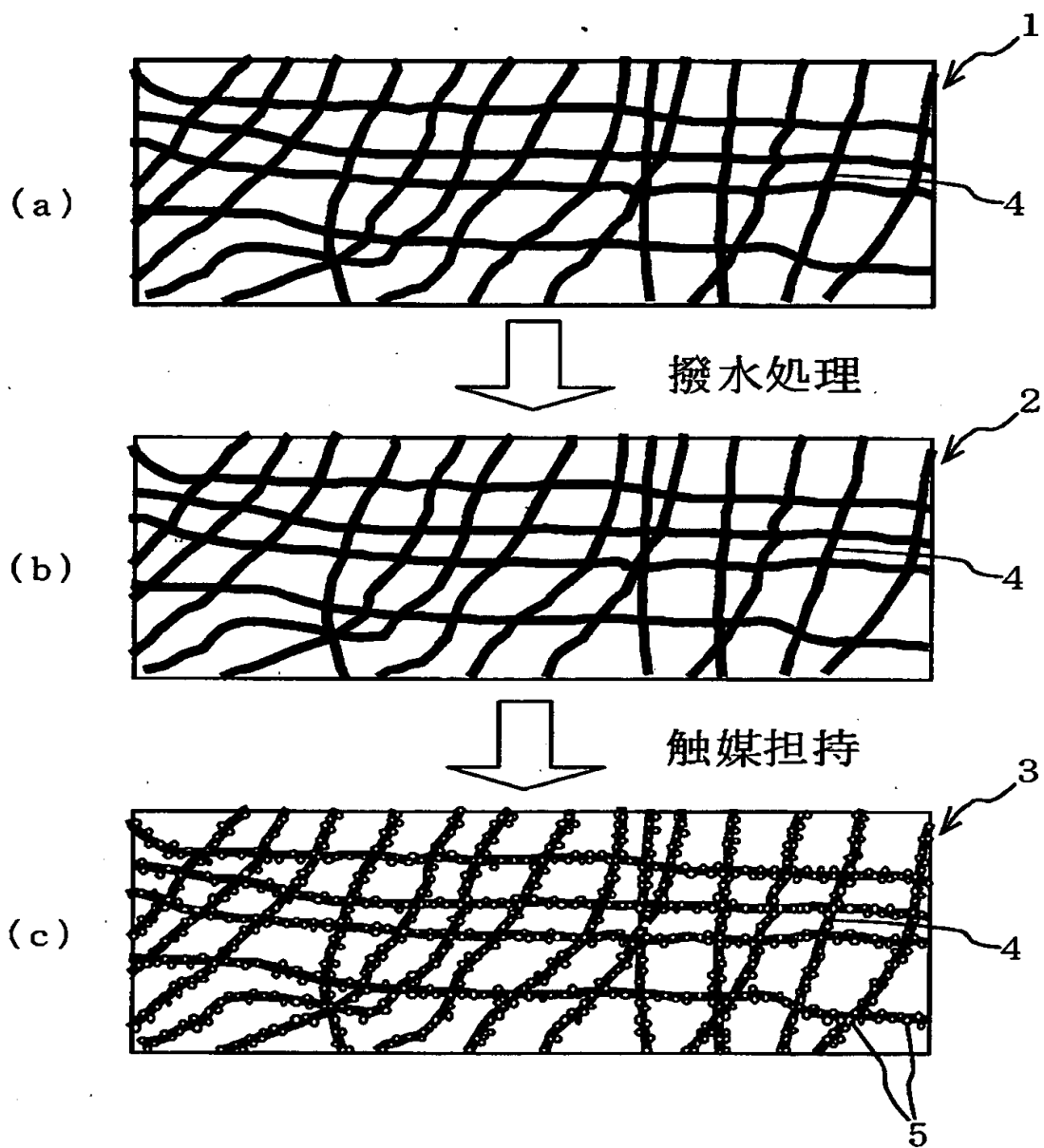
従来の固体高分子電解質型燃料電池のセルの基本構造を示す断面図

【符号の説明】

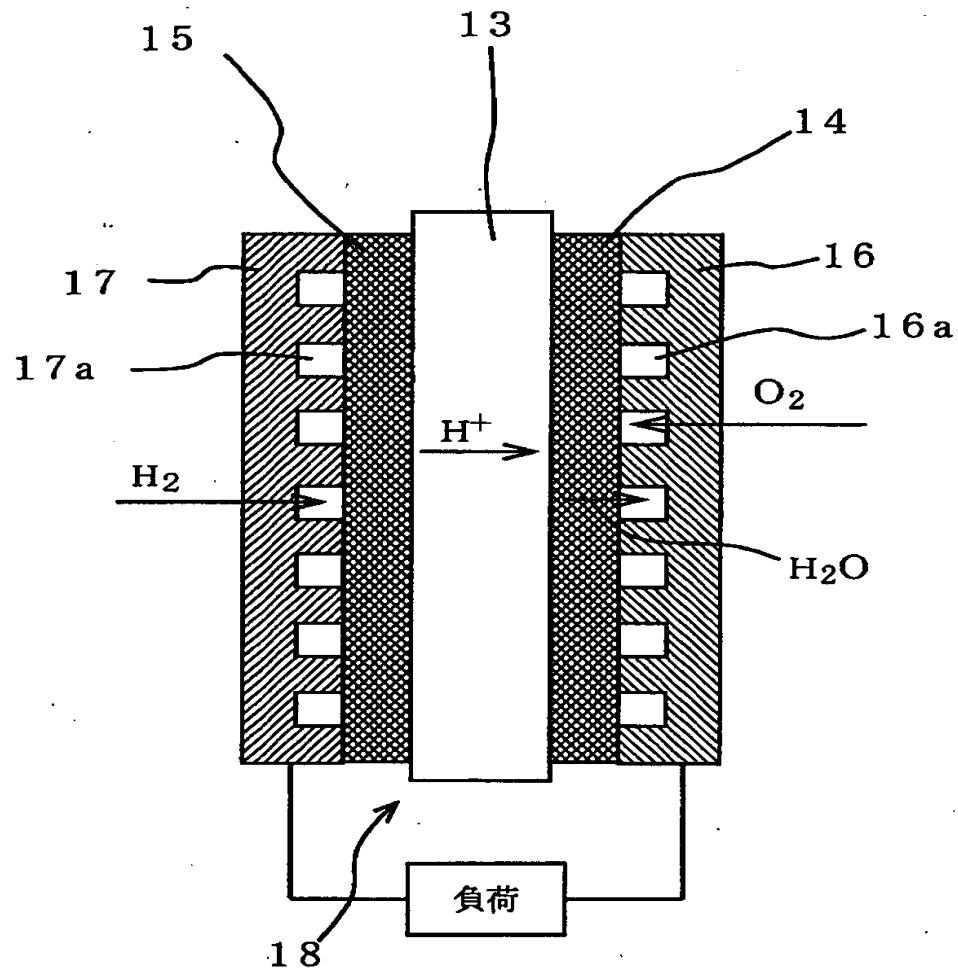
- 1 …活性炭素繊維カーボンクロス（電極構造体）
- 3、9 …燃料電池用電極
- 4、10 …活性炭素繊維（導電性繊維）
- 5、12 …白金粒子（触媒）
- 7 …電極構造体
- 11 …カーボンブラック粒子（導電性粒子）
- 13 …固体高分子電解質膜
- 14 …酸化剤極（燃料電池用電極）
- 15 …燃料極（燃料電池用電極）
- 16、17 …セパレータ
- 16a …酸化剤ガス流路（ガス流路）
- 17a …燃料ガス流路（ガス流路）
- 18 …膜電極接合体

【書類名】 図面

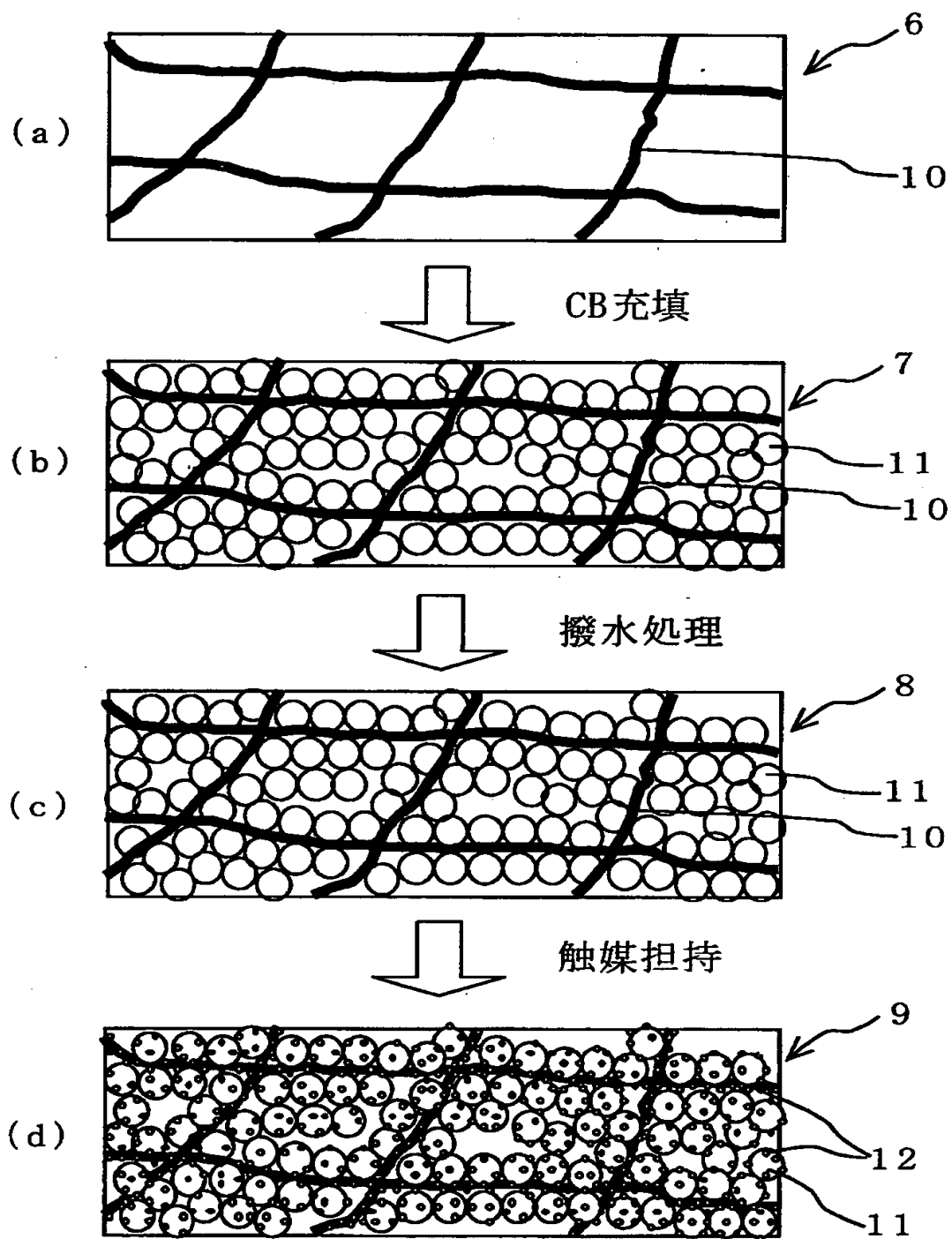
【図 1】



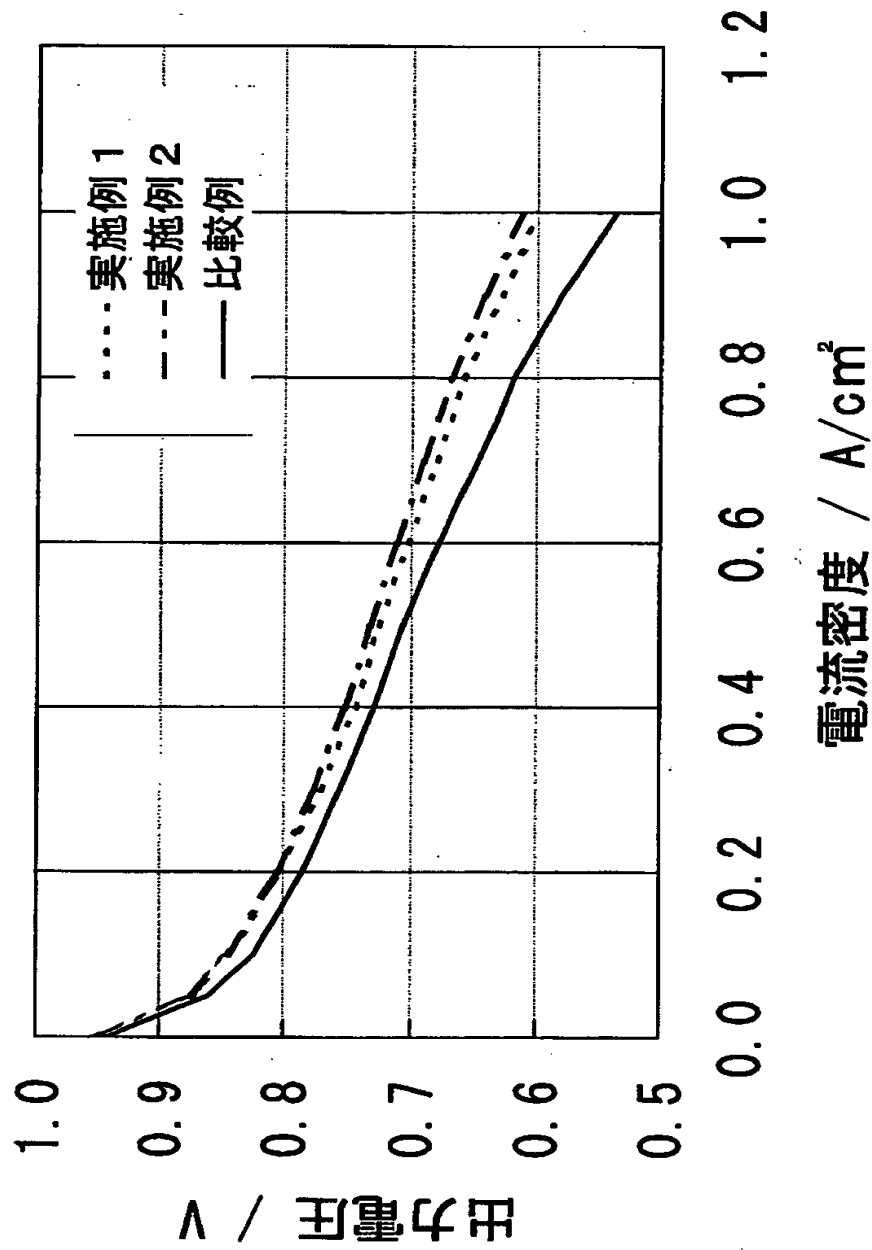
【図 2】



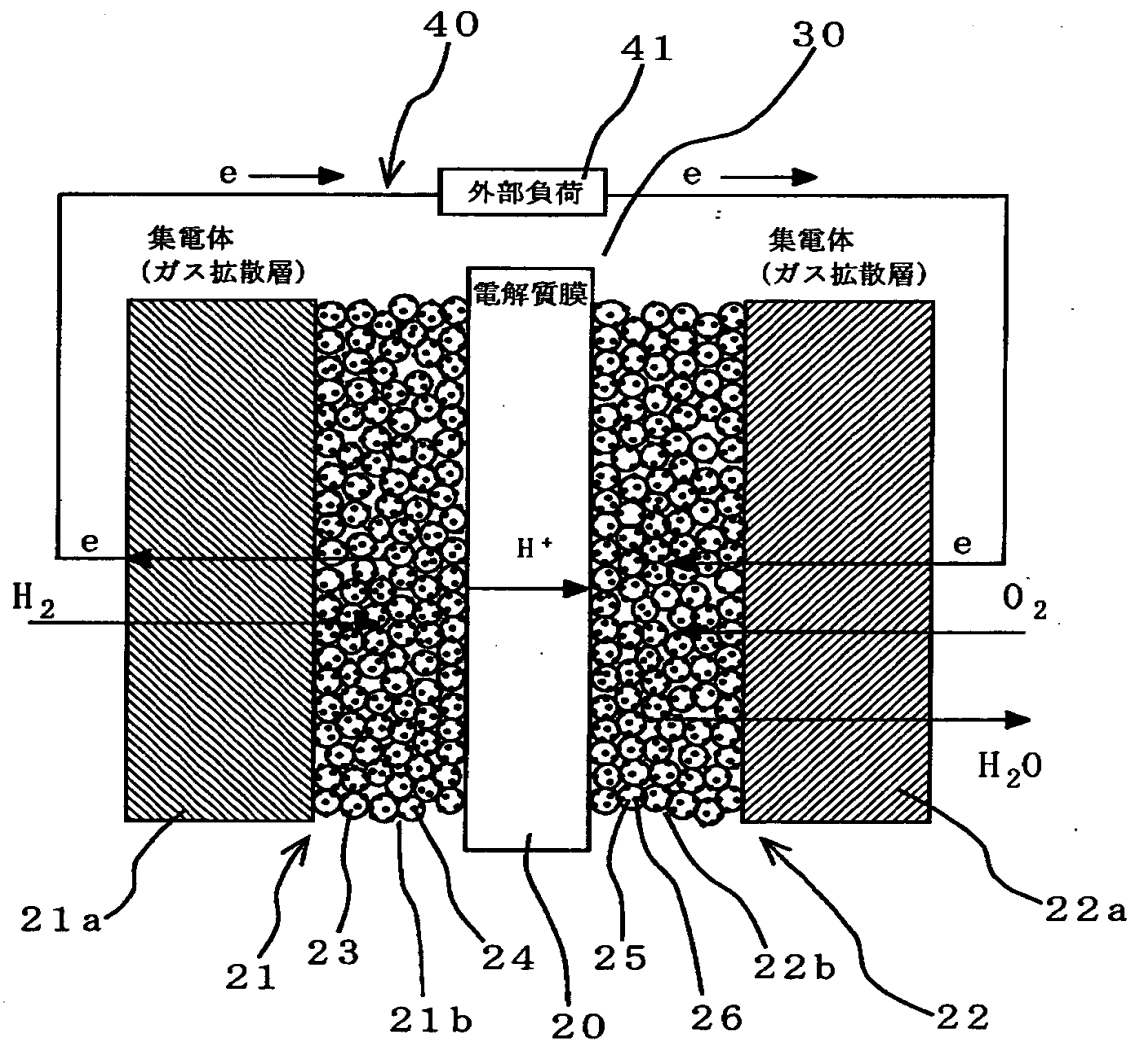
【図3】



【図4】



【図5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池用電極の内部抵抗を小さく、ガスや水の拡散性を向上させ、燃料電池の出力特性を向上させる。

【解決手段】 導電性とガス透過性を有する電極構造体 1、7 と、該電極構造体 1、7 に直接担持された触媒 5、12 が備えられていることを特徴とする燃料電池用電極 3、9、14、15 およびこの燃料電池用電極 3、9、14、15 により両側から挟持されて膜電極接合体 18 を形成する固体高分子電解質膜 13 と、前記燃料電池用電極 3、9、14、15 に当接して位置し、該燃料電池用電極 3、9、14、15 との当接面にガス流路 16a、17a が設けられ、前記膜電極接合体 18 を挟持する一対のセパレータ 16、17 が設けられていることを特徴とする燃料電池。

【選択図】 図 1



認定・付加情報

特許出願の番号	特願2001-006811
受付番号	50100045722
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成13年 1月16日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成13年 1月15日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000011]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地

氏 名 アイシン精機株式会社